

Resonancia ciclotrónica y dispersión inelástica de luz en puntos cuánticos semiconductores

Augusto González

*Instituto de Cibernética, Matemática y Física, Calle E 309, Vedado, Ciudad Habana, Cuba**

Alain Delgado

*Centro de Aplicaciones Tecnológicas y Desarrollo Nuclear,
Calle 30 No 502, Miramar, Ciudad Habana, Cuba†*

Resumimos un conjunto de resultados teóricos relacionados con la absorción en el infrarrojo y la dispersión inelástica (Raman) de luz en puntos cuánticos semiconductores. Cuando es posible, se presenta la comparación cualitativa con mediciones experimentales recientes.

I. INTRODUCCIÓN

El enorme interés que se manifiesta recientemente hacia los dispositivos semiconductores de tamaño nanométrico tiene dos aristas. Por un lado, al reducir las dimensiones se puede aumentar el nivel de integración (es decir, el número de elementos, transistores, etc por unidad de área). Y por otro lado, al reducir las dimensiones disminuyen los tiempos de respuesta, o sea que los dispositivos funcionan mas rápidamente. En ambos casos, el resultado es un elemento electrónico u óptico mas pequeño y potente.

La tendencia a reducir el tamaño se encuentra, sin embargo, con un límite natural, el denominado límite cuántico, que podríamos resumir en que los dispositivos no pueden ser mas pequeños que átomos, las cargas no mas pequeñas que la del electrón, ni la intensidad de luz absorbida o emitida menor que la de un fotón.

La nanotecnología y la nanociencia producen y estudian dispositivos compuestos de varios átomos, o de varias moléculas, o de varias capas atómicas en un sólido, o donde intervienen unos pocos electrones. Como ejemplo citemos el trabajo [1] donde, a través de mediciones de conductancia de alta precisión es posible establecer que en un punto cuántico están confinados 1, 2, 3, ..., hasta 40 electrones.

En el presente artículo nos concentraremos en procesos ópticos que tienen lugar en puntos cuánticos semiconductores, en particular la absorción de luz en el infrarrojo y la dispersión inelástica de luz (efecto Raman). Aunque no se pretende una comparación directa con el experimento, nuestros resultados están motivados por datos experimentales recientes^{2,3}, con los cuales se hace una comparación cualitativa. Los resultados son expuestos de forma resumida en las próximas secciones. Los detalles pueden hallarse en las versiones publicadas^{4,5,6,7}.

II. RESONANCIA DE CICLOTRÓN EN PUNTOS CUÁNTICOS

Consideremos un sistema de electrones cuyo movimiento está confinado a un plano y sobre los cuales actúa un campo magnético perpendicular al plano

de movimiento. También a lo largo de la normal, hacemos incidir luz polarizada circularmente. La absorción de luz en el infrarrojo mostrará un único pico localizado en la denominada energía de ciclotrón, $\hbar\omega_{ce} = \hbar eB/m_e$. Este resultado se conoce como Teorema de Kohn⁸ y se debe a que la luz se acopla con el centro de masa del conjunto de electrones. Para un sistema de huecos, que se comportan como partículas con carga positiva, la posición del pico de absorción se halla por la misma formula (basta sustituir m_e por m_h), pero la polarización de la luz es opuesta. Los electrones absorben la polarización σ^+ y los huecos la σ^- .

Este razonamiento permite comprender a grandes rasgos el experimento reportado en [2], donde en esencia se mide la absorción de ciclotrón para electrones en un pozo cuántico como función de la concentración de electrones en el mismo. A diferencia del problema mencionado en el párrafo anterior, un segundo láser con energía superior a la brecha del semiconductor crea pares electrón-hueco, con lo que el sistema no contiene sólo cargas negativas, sino muchos electrones y un hueco. Por esa razón, la posición del pico de absorción deja de seguir la formula simple mencionada mas arriba y comienza a depender de la concentración (densidad superficial) de electrones. Los resultados experimentales son “interpretados” en términos de excitaciones colectivas del tipo plasmón mas un hueco. Dichos resultados pueden resumirse en que el pico de absorción se corre hacia el azul a medida que aumenta la concentración de electrones.

En el trabajo [4] se calcula la absorción en el infrarrojo de sistemas compuestos por unos pocos electrones (de 2 a 5) y un hueco. En el plano del movimiento se ha superpuesto, además, un potencial parabólico, con el cual modelaremos un punto cuántico⁸. El trabajo extiende los cálculos presentados previamente para el biexcitón (2 electrones mas 2 huecos) en un punto⁹.

La comparación directa de nuestros resultados con el experimento reportado en [2] desde luego que no es posible. El confinamiento lateral puede inducir comportamientos que no están presentes en el caso infinito. Sin embargo, uno espera que cualitativamente se reproduzca el corrimiento al azul observado en el experimento. Por otro lado, no existen impedimentos para realizar mediciones directamente en un punto cuántico o en un arreglo

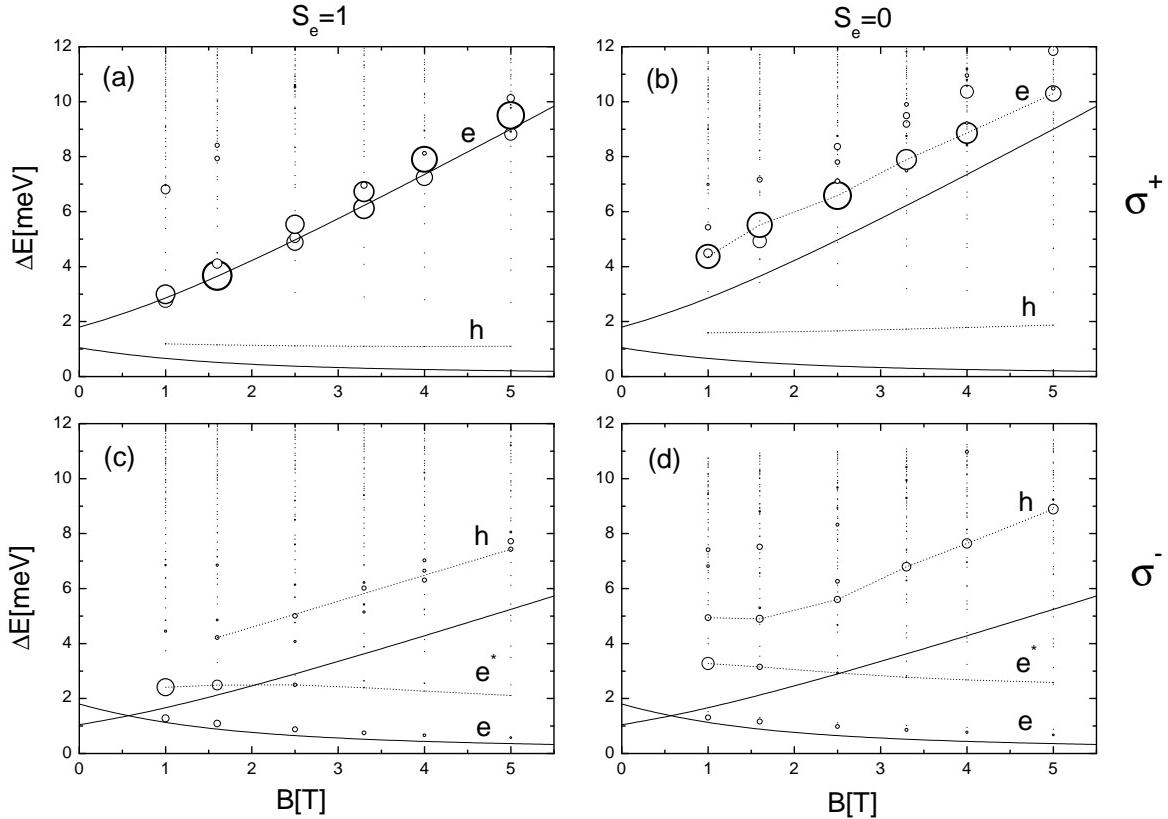


FIG. 1: Posición de los picos de absorción y fortalezas de oscilador para el trión en estados tripletes ($S_e = 1$) y singletes ($S_e = 0$) de espín y polarización de la luz σ^\pm .

de puntos. Nótese que en [2] la absorción en el infrarrojo se mide indirectamente a través de los cambios inducidos en la luminiscencia cuando el haz infrarrojo es conectado. Y la luminiscencia es una técnica extremadamente sensible y de fácil implementación.

Para los cálculos utilizamos un modelo simple de dos bandas con parámetros apropiados para el GaAs. La matriz hamiltoniana se diagonaliza exactamente en una base de funciones de partículas libres en un campo magnético. Las dimensiones de esta matriz están entre 40,000 para los sistemas más pequeños y 350,000 para los más grandes. Matrices de estas dimensiones son diagonalizadas con ayuda del algoritmo de Lanczos¹⁰, el cual nos permite obtener un conjunto de los autovalores más bajos de energía. El error estimado para las energías de excitación es de 0.02 meV y para las fortalezas de oscilador (normalizadas a la unidad) de 0.02.

Un ejemplo de los resultados se muestra en la Fig. 1. En este caso, el sistema tratado es el trión o X^- (es decir 2 electrones y un hueco, lo que daría una carga neta igual a -1). En general, X^{n-} designará a un sistema compuesto por $n + 1$ electrones y un hueco). Los gráficos están separados de acuerdo a la proyección sobre el campo magnético del espín total de los electrones, S_e y a la polarización de la luz absorbida. Los puntos en los gráficos dan las posiciones de los picos principales de

absorción. Como información adicional damos también la fortaleza de oscilador en forma de un círculo centrado en la posición del pico de absorción. De manera que un círculo grande simboliza un pico fuerte de absorción.

En los gráficos se ven también líneas gruesas que simbolizan la posición de los máximos de Kohn para electrones o huecos en un punto cuántico parabólico⁸:

$$\Delta E_\pm^{(e)} = \hbar\Omega_e \pm \frac{\hbar\omega_{ce}}{2}, \quad (1)$$

$$\Delta E_\pm^{(h)} = \hbar\Omega_h \mp \frac{\hbar\omega_{ch}}{2}, \quad (2)$$

donde $\Omega_e = \sqrt{\omega_{0e}^2 + \omega_{ce}^2}/4$, ω_{0e} es la frecuencia correspondiente al confinamiento lateral de los electrones, etc. El subíndice \pm en la energía se refiere a la absorción de un fotón con polarización σ^\pm .

El resultado principal de nuestros cálculos se puede resumir en que la interacción entre los electrones y el hueco provoca un corrimiento de los picos de absorción con respecto a la posición predicha por (1, 2). La dependencia de este corrimiento respecto a la carga neta, n , del punto cuántico es la siguiente: cuando n va de 1 a 3 el corrimiento disminuye (es decir, los picos se acercan a las

posiciones dadas por (1, 2)), mientras que para $n = 4$ crece nuevamente, manifestando la tendencia observada en el experimento de que cuando la concentración de electrones aumenta los picos de absorción se corren hacia el azul.

III. DISPERSIÓN RAMAN EN PUNTOS CUÁNTICOS

Consideremos, otra vez, el modelo simplificado de punto cuántico parabólico descrito en la sección anterior, pero incluyamos en el decenas de electrones. La intención es acercarnos a las condiciones de los experimentos [3], en los cuales se miden las intensidades Raman en pun-

tos con decenas o cientos de electrones. La dispersión de la luz en este modelo se puede calcular a partir de la teoría de perturbaciones de segundo orden¹¹. Es decir, el tránsito desde un estado inicial electrónico, $|i\rangle$, hasta un estado final, $|f\rangle$, con la consiguiente absorción de un fotón de frecuencia ν_i y emisión de otro de frecuencia ν_f , se realiza a través del paso (virtual) por estados intermedios, $|int\rangle$. En las condiciones de los experimentos, la energía del fotón incidente es $h\nu_i \gtrsim E_{gap}$, donde E_{gap} es la brecha del semiconductor, por lo que los estados intermedios contienen, además de los electrones iniciales, un par adicional electrón - hueco.

La amplitud del proceso se calcula a partir de la expresión:

$$A_{fi} \sim \sum_{int} \frac{\langle f, N_i - 1, 1_f | H_{e-r}^+ | int, N_i - 1 \rangle \langle int, N_i - 1 | H_{e-r}^- | i, N_i \rangle}{h\nu_i - (E_{int} - E_i) + i\Gamma_{int}}, \quad (3)$$

donde H_{e-r} es el hamiltoniano de interacción de los electrones con la radiación y Γ_{int} es el ancho energético (fenomenológico) de los niveles intermedios. N_i es el número de fotones en el haz incidente.

El cálculo de A_{fi} requiere de : a) Las energías y funciones de onda uniparticulares de electrones y huecos, que son obtenidas en la aproximación de Hartree-Fock. Las mismas son utilizadas como punto de partida en los pasos posteriores. b) Los estados finales de N_e electrones, $|f\rangle$, hallados por medio de la aproximación de fase aleatoria (RPA por sus siglas en inglés)¹². c) Los estados intermedios de $N_e + 1$ electrones y un hueco, $|int\rangle$, que se obtienen a partir del denominado formalismo pp-RPA. Y, finalmente, d) calcular los elementos de matriz de H_{e-r} con estas funciones y realizar la suma (3).

Con las amplitudes A_{fi} uno calcula la sección eficaz de dispersión:

$$\frac{d\sigma}{d\nu_f} \sim \sum_f |A_{fi}|^2 \delta(E_i + h\nu_i - E_f - h\nu_f), \quad (4)$$

que es la magnitud medida experimentalmente.

Como se mencionó antes, en el conjunto de experimentos discutidos en [3] se obtienen los espectros Raman en puntos con decenas o cientos de electrones. Mediciones sin o en presencia de campos magnéticos, sin o teniendo en cuenta la polarización de la luz incidente y reflejada, bajo diferentes condiciones de resonancia, son reportadas en estos experimentos. De forma simplificada, podemos resumir los resultados así: bajo condiciones de resonancia extrema (es decir cuando $h\nu_i$ prácticamente coincide con E_{gap}) el espectro Raman es dominado por excitaciones uniparticulares, mientras que a 40 meV o más por

encima de E_{gap} los picos Raman están asociados a estados finales que representan excitaciones colectivas (de espín o de carga). En los experimentos, $h\nu_i$ no va mucho mas allá de 40 meV por encima de E_{gap} con el objetivo de no inducir procesos con fonones ópticos. El efecto principal del campo magnético es mezclar las excitaciones de espín y de carga, así como desplazar la posición de los picos Raman.

En el artículo [7] se presenta un análisis detallado de la dispersión Raman a cero campo magnético. Se consideran tres condiciones de resonancia: a) $E_{gap} - 30$ meV $< h\nu_i < E_{gap}$, b) $E_{gap} < h\nu_i < E_{gap} + 30$ meV (resonancia extrema) y c) $E_{gap} + 30$ meV $< h\nu_i$. El caso a) no ha sido abordado experimentalmente pero en el artículo se muestra su utilidad para identificar los diferentes picos en el espectro. La teoría presentada en [7] reproduce de forma cualitativa los aspectos mas relevantes observados en el experimento y señala otros, como por ejemplo el papel de Γ_{int} y su dependencia con la energía de excitación, que no habían sido notados previamente.

Como ejemplo y resumen de los resultados de [7], en la Fig. 2 mostramos la intensidad del pico mas importante del espectro (excitación monopolar colectiva de carga) como función de la energía de excitación, $h\nu_i$. La brecha efectiva en este caso es aproximadamente 1600 meV. En el caso $h\nu_i < E_{gap}$ observamos una dependencia monótona de la intensidad del pico Raman. En resonancia extrema, por el contrario, las oscilaciones abruptas de la intensidad están asociadas a estados intermedios resonantes con $h\nu_i$. Cuando $h\nu_i > E_{gap} + 30$ meV, el aumento de Γ_{int} hace que se pierda la dependencia oscilante con Γ_{int} observada antes y, en general, provoca una disminución de la intensidad. Sólo para determinados estados intermedios del tipo “excitón + excitación

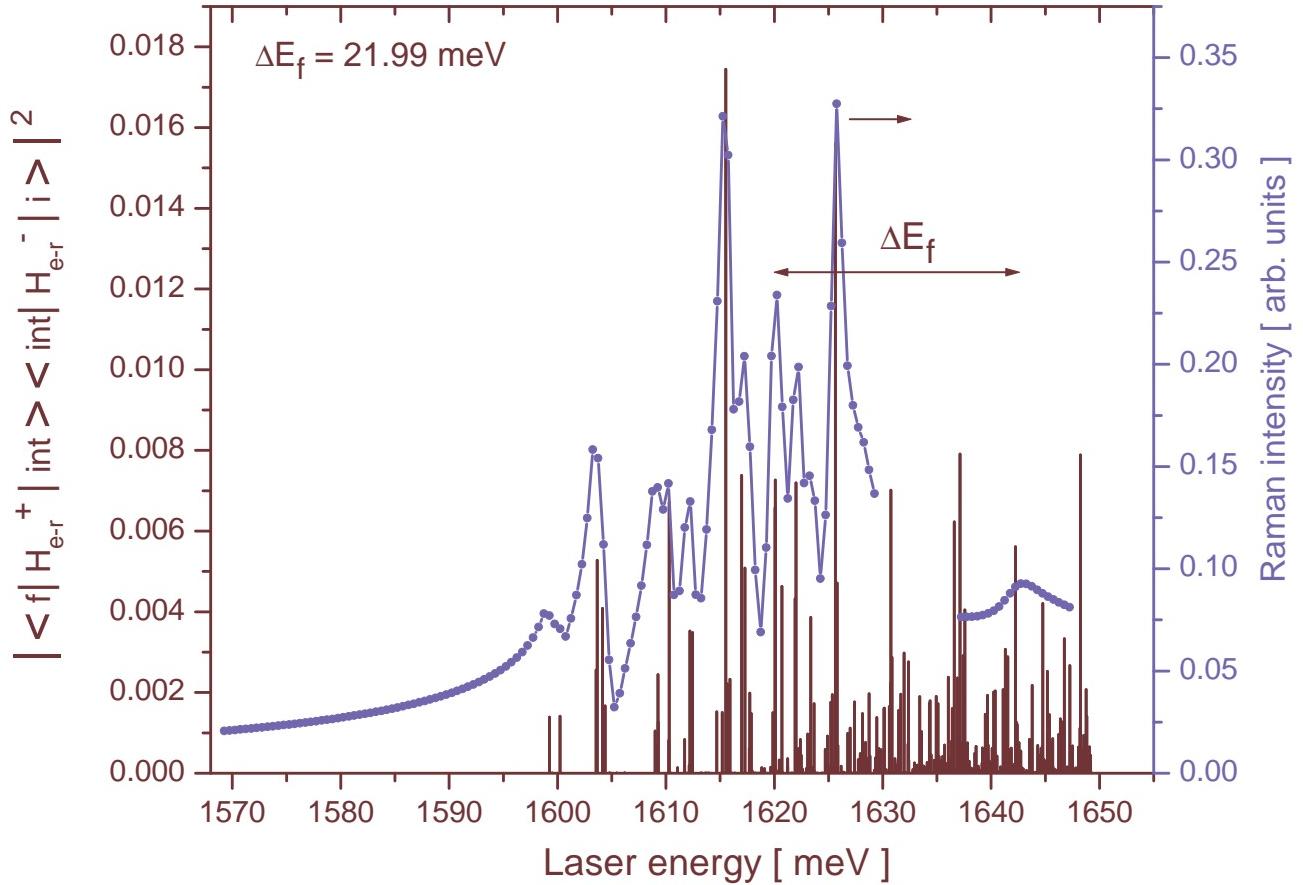


FIG. 2: Intensidad del pico Raman asociado a un estado final monopolar de carga como función de $h\nu_i$. Una resonancia en el canal de salida a 1642 meV es modelada.

colectiva”, Γ_{int} conserva valores relativamente pequeños. En la figura, uno de estos estados es el responsable del aumento de intensidad en $h\nu_i \approx 1642$ meV. En la figura se han incluido, además, en forma de líneas verticales los numeradores que entran en la suma (3). La comparación con las intensidades Raman muestra que los efectos de interferencia son poco importantes en estos procesos.

Otros resultados con y sin campo magnético externo incluído son presentados en [6]. El caso de puntos cuánticos neutros o no dopados, donde una población de electrones y huecos con $N_e = N_h$ es inducida por un segundo láser, es tratado en [5]. Este último caso hasta el momento no cuenta con una comprobación experimental.

IV. CONCLUSIONES Y PERSPECTIVAS

Hemos presentado a grandes rasgos los resultados de los artículos [4,5,6,7] sobre absorción en el infrarrojo y dispersión Raman en puntos cuánticos, así como los experimentos [2,3] que motivaron estos cálculos.

La perspectiva más interesante que se abre ante nuestros ojos se relaciona con el efecto Raman. Cálculos detallados en presencia de campo magnético son interesantes

de por si y necesarios en caso de una comparación con resultados experimentales. Por otro lado, el ancho de los niveles intermedios Γ_{int} (o por lo menos la contribución fonónica al mismo) puede ser calculado e introducido en la expresión (3). Tal y como se mostró en [7] con un ansatz fenomenológico para Γ_{int} , incluir la dependencia de Γ_{int} con la energía de excitación es imprescindible para una descripción correcta de la dispersión Raman cuando $h\nu_i > E_{gap} + 30$ meV. Otra posibilidad interesante es la descripción de las resonancias en los canales de salida, que en [13] se interpretaron como “excitón + excitación colectiva”. La modificación requerida en nuestro formalismo consiste en añadir a los estados intermedios (que en esencia se construyen como un par electrón - hueco por encima del estado de Hartree - Fock de N_e electrones) otras componentes que correspondan a un par electrón - hueco mas una excitación del estado de Hartree - Fock. Estas perspectivas teóricas y el interés mostrado por experimentalistas en retomar las mediciones Raman sobre bases superiores garantizan que el efecto Raman continuará siendo un tema de trabajo excitante en los próximos años.

Agradecimientos

Este artículo de revisión está basado en trabajos conjuntos con R. Pérez, J. Mahecha, E. Menéndez-Proupin

y D.J. Lockwood.

^{*} Electronic address: agonzale@icmf.inf.cu

[†] Electronic address: gran@ceaden.edu.cu

- ¹ S. Tarucha, D.G. Austing, T. Honda, Phys. Rev. Lett. **77**, 3613 (1996).
- ² H.A. Nickel, T.M. Yeo, A.B. Dzyubenko, B.D. McCombe, A. Petrou, A.Yu. Sivachenko, W. Schaff, and V. Umansky, Phys. Rev. Lett. **88**, 056801 (2002).
- ³ C.M. Sotomayor-Torres, D.J. Lockwood, and P.D. Wang, J. Electr. Materials **29**, 576 (2000).
- ⁴ R. Pérez, A. González and J. Mahecha, J. Phys.: Condens. Matter **15**, 7681 (2003).
- ⁵ A. Delgado, A. González and E. Menéndez-Proupin, Phys. Rev. **B 65**, 155306 (2002).
- ⁶ A. Delgado and A. González, J. Phys.: Condens. Matter **15**, 4259 (2003).

⁷ A. Delgado, A. González and D.J. Lockwood, Phys. Rev. **B 69**, 155314 (2004).

⁸ L. Jacak, P. Hawrylak, and A. Wojs, *Quantum dots* (Springer-Verlag, Berlin, 1998).

⁹ R. Pérez and A. González, J. Phys.: Condens. Matter, **13**, L539 (2001).

¹⁰ Una descripción breve del algoritmo de Lanczos puede hallarse en A. González, Revista Cubana de Física **19**, 5 (2002).

¹¹ R. Loudon, Adv. Phys. **13**, 423 (1964).

¹² P. Ring and P. Schuck, *The Nuclear Many-Body Problem* (Springer-Verlag, New-York, 1980).

¹³ G. Danan, A. Pinczuk, J.P. Valladares, L.N. Pfeiffer, K.W. West, and C.W. Tu, Phys. Rev. **B 39**, 5512 (1989).